REMARKS

Election/Restriction

The Examiner is of the opinion that five distinct inventions are claimed in the instant application and requires Applicant to elect a single group of claims identified by the Examiner for prosecution on the merits. Specifically, the Examiner has divided the claims into the following groups:

Group I: Claims 1 - 12, directed to a micro-mechanical hinge;

Group II: Claims 13 - 23, directed to a V antenna;

Group III: Claims 24 - 40, directed to a docking switch;

Group IV: Claims 41 - 47, directed to a reconfiguraable capacitor; and

Group V: Claims 48 - 62, directed to a reconfigurable microstrip line.

Applicant hereby elects Group II, Claims 13 - 23 directed to a V antenna, with traverse, and without prejudice to applicant's right to pursue the remaining non-elected claims in one or more subsequent divisional applications.

Based on the foregoing, Applicant respectfully submits that the application is now in condition for allowance. If any matters can be resolved by telephone, the Examiner is invited to call the undersigned attorney at the telephone number listed below. The Commissioner is authorized to charge any additional fees to Deposit Account No. 50-2319 (Order No. A-68000/MSS (464334-112).

Respectfully submitted,

Maria \$. Swiatek, Reg. No. 37,244

CUSTOMER NO. 32940
DORSEY & WHITNEY LLP
Four Embarcadero Center, Suite 3400
San Francisco, CA 94111-4187

Telephone: (650) 494-8700 Facsimile: (650) 494-8771

$$X$$
 NaO_3S
 X
 X
 SO_3Na
 SO_3Na

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2 zur Darstellung der Perylenfarbstoffe, dadurch gekennzeichnet, daß man Perylen-3,4:9,10-tetracarbonsäurebisanhydrid mit dem entsprechenden primären Amin unter Verwendung von Imidazol und Schwermetallsalzen, bevorzugt Zink- oder Bleisalze, am meisten bevorzugt Zinkacetat, bei Temperaturen von 90 bis 250°C, bevorzugt 130 bis 220°C, kondensiert.

10

55

- 4. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2 zur Darstellung der Perylenfarbstoffe, dadurch gekennzeichnet, daß man die entsprechenden Sulfonsäureamide, die in an und für sich bekannter Weise hergestellt werden können, mit Schwefelsäure verseift.
- 5. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2 zur Darstellung der Perylenfarbstoffe, dadurch gekennzeichnet, daß man die entsprechenden Sulfonsäureamide, die in an und für sich bekannter Weise hergestellt werden können, mit Nitriten, bevorzugt Natriumnitrit, in Schwefelsäure verseift.
- 6. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2 zur Darstellung der Perylenfarbstoffe, dadurch gekennzeichnet, daß man die unter 4 und 5 genannten Sulfonsäureamide unter Zusatz von Sulfiten, bevorzugt Natriumsulfit, alkalisch oder sauer verseift.
- 7. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2 zur Darstellung der Perylenfarbstoffe, dadurch gekennzeichnet, daß man in die Perylenfarbstoffe 1 oder 2 ein bis vier Chloratome einführt.
- 8. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2 zur Darstellung der Perylenfarbstoffe, dadurch gekennzeichnet, daß man die Reindarstellung der Farbstoffe durch eine extraktive Umkristallisation (vgl. H. Langhals, Chem. Ber. 118, 4641 (1986)) ausführt.
- 9. Verfahren der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe in Farbstoff-Lasern.
- 10. Verfahren der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe in hochempfindlichen Nachweisverfahren auf der Basis der Fluoreszenz (siehe C. Aubert, J. Fünfschilling, I. Zschokke-Gränacher und H. Langhals, Z. Analyt. Chem. 320, 361 (1985)).
- 11. Verwendung der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe für Tracer-Anwendungen bei biochemischen, medizinischen, geologischen, technischen und wissenschaftlichen Anwendungen.
- 12. Verwendung der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe in Szintillato-
- 13. Verwendung der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe in optischen Lichtsammelsystemen.
- 14. Verwendung der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe in Fluoreszenz-Solarkollektoren (siehe H. Langhals, Nachr. Chem. Tech. Lab. 28, 716 (1980)).
- 15. Verwendung der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe in Fluoreszenz-aktivierten Displays (siehe W. Greubel und G. Baur, Elektronik 26, 6 (1977)).
- 16. Verwendung der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe in Kaltlichtquellen zur lichtinduzierten Polymerisation zur Darstellung von Kunststoffen.
- 18. Verwendung der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe zur Materialprüfung, z. B. bei der Herstellung von Halbleiterschaltungen.
- 19. Verwendung der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe zur Untersuchung von Mikrostrukturen von integrierten Halbleiterbauteilen.
- 20. Verwendung der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe in fotografischen Verfahren.
- 21. Verwendung der Perylentetracarbonsäurebisimide nach Anspruch 1 oder 2 als Farbstoffe in Chemilumineszenz-Systemen, z. B. in Chemilumineszenz-Leuchtstäben, in Lumineszenzimmunessays oder anderen Lumineszenz-Nachweisverfahren.

Beschreibung

Perylen-Fluoreszenzfarbstoffe, Perylen-3,4:9,10-tetracarbonsäurebisimide; zeichnen sich durch ihre hohen Photostabilitäten (Lichtechtheiten) bei großen Fluoreszenzquantenausbeuten aus. Aufgrund ihrer hohen Lichtechtheit gelang es, von den Perylenfarbstoffen bei Laser-Anregung noch 10⁻¹⁸ mol mit einer Genauigkeit von 5% quantitativ zu bestimmten (C. Aubert, J. Fünfschilling, I. Zschokke-Gränacher und H. Langhals, Z. Analyt Chem. 320, 361 (1985)). Durch diese hohe Nachweisempfindlichkeit sind die Perylenfarbstoffe für Markierungen, z. B. in der Biochemie, von Interesse. Es stört dabei allerdings die geringe Wasserlöslichkeit der Farbstoffe, die durch den großen, hydrophoben aromatischen Grundkörper bedingt ist.

Als hochstabile Laser-Farbstoffe haben sich die Perylenfarbstoffe ebenfalls bewährt (M. Sadrai und C. Bird, Opt. Commun. 51, 62 (1984)). Auch bei dieser Anwendung wäre eine gute Löslichkeit in Wasser wünschenswert, da ein wäßriges Medium wegen des geringen Brechungsindexes, der hohen spezifischen Wärme und der leichten

Verfügbarkeit in hochreiner Form hierfür besonders günstig ist.

35

45

50

55

60

65

Die Perylen-3,4:9,10-tetracarbonsäurebisimide werden üblicherweise aus dem technisch gut zugänglichen Perylen-3,4:9,10-tetracarbonsäurebisanhydrid durch Kondensation mit dem entsprechenden Amin unter Verwendung von Zinkacetat und Chinolin hergestellt. Diese Kondensation gelingt aber mit Aminobenzolsulfonsäuren nicht oder nur mit sehr schlechten Ausbeuten. Möglicherweise ist hierfür die Bildung von Betainen verantwortlich.

Zur Darstellung der Sulfonsäuren können aber die entsprechenden Aminosulfonamide mit der Perylentetracarbonsäure in an und für sich bekannter Weise kondensiert werden. Eine extraktive Umkristallisation (H. Langhals, Chem. Ber. 118, 4641 (1986)) bringt hier ebenfalls die entscheidende Verbesserung bei der Reinigung der Farbstoffe. Aus den so dargestellten Farbstoffen, die Sulfonamid-Gruppen tragen, lassen sich die freien Sulfonsäuren durch eine Verseifung der Gruppen darstellen. Für diese Verseifungsreaktion hat sich das Gemisch Natriumnitrit/Schwefelsäure besonders bewährt.

Dieser Syntheseweg bietet zwar prinzipiell die Möglichkeit, wasserlösliche Perylenfarbstoffe darzustellen, er ist jedoch für die Gewinnung großer Mengen an Farbstoffen umständlich — eine einstufige Synthese wäre hier günstiger.

Wählt man als Reaktionsmedium für die Kondensation geschmolzenes Imidazol und setzt Zinkacetat zu, so findet man zum Erstaunen, daß bereits die Aminobenzolsulfonsäuren glatt mit Perylen-3,4:9,10-tetracarbonsäurebisanhydrid zu der Perylen-3,4:9,10-tetracarbonsäurebisimiden (Perylenfarbstoffe) abreagieren, die nun Sulfonsäuregruppen tragen. Bei dieser Synthese fallen die Sulfonsäuren als Imidazoliumsalze an. Für die Handhabung der Sulfonsäuren optimalen Natrium- oder Kaliumsalze können direkt bei der Aufarbeitung der rohen Imidazoliumsalze erhalten werden, wenn man eine extraktive Umkristallisation mit Methanol in natrium- bzw. kaliumacetathaltigem Methanol vornimmt. Die freien Sulfonsäuren können aus ihren Natrium- oder Kaliumsalzen hergestellt werden, wenn die letzteren in wasserfreiem Ethanol gelöst werden, und die Lösung dann mit gasförmigem Chlorwasserstoff gesättigt wird. Die Sulfonsäuren bleiben in Lösung, während die Alkalimetall-chloride ausfallen. Sie werden abgetrennt, und die Sulfonsäuren werden durch Eindampfen der Lösung gewonnen. Die freien Sulfonsäuren sind hygroskopisch und können für die meisten Anwendungen durch ihre Natriumoder Kaliumsalze ersetzt werden, die wesentlich besser zu handhaben sind.

Die Sulfonsäuren bzw. deren Natrium- oder Kaliumsalze fluoreszieren in organische Lösungsmitteln, wie z. B. Ethanol, mit hohen Quantenausbeuten. Für rein wäßrige Lösungen wird zum Erstaunen gefunden, daß die Tetrasulfonsäuren i. allgem. mit höheren Quantenausbeuten fluoreszieren als die Disulfonsäuren. Die Photostabilität der Farbstoffe ist sehr hoch.

Mit den Farbstoffen 1d und 1e stehen damit photostabile Fluoreszenzfarbstoffe zur Verfügung, die auch in rein wäßriger Lösung mit hohen Quantenausbeuten fluoreszieren. Für diese Farbstoffe ergibt sich eine Fülle von Anwendungsmöglichkeiten:

— Einsatz in Farbstoff-Lasern. Hier kommen die großen Photostabilitäten und hohen Fluoreszenzquantenausbeuten der Farbstoffe zum Tragen. Die Wasserlöslichkeit der Farbstoffe ist besonders günstig, da dieses
Lösungsmittel neben seiner leichten Verfügbarkeit in hochreiner Form den Vorteil einer hohen spezifischen
Wärme und eines kleinen Brechungsindexes besitzt. Ein Farbstoff-Laser kann daher unter optimalen
Bedingungen betrieben werden. Erste Untersuchungen haben zudem ergeben, daß die Triplett-Ausbeute
der Farbstoffe gering sind, so daß sie optimal für Laser geeignet sind.

— Einsatz in hochempfindlichen analytischen Nachweisverfahren (siehe C. Aubert, F. Fünfschilling, I. Zschokke-Gränacher und H. Langhals, Z. Analyt. Chem. 320, 361 (1985)) unter Verwendung der Fluoreszenz durch Laser-Anregung. Perylenfarbstoffe sind nach diesem Verfahren bei einer Verdünnung von 10⁻¹³ mol/1 und einer absoluten Menge von 10⁻¹⁸ mol auf 5% genau quantitativ bestimmt worden. Der Einsatz der hier beschriebenen Farbstoffe ist auch für dieses Verfahren sehr vorteilhaft.

— Verwendung der Farbstoffe ganz allgemein als Tracer. Dies kann zum einen direkt durch einen Zusatz der Farbstoffe geschehen, die dann über das Fluoreszenzspektrum identifiziert und quantitativ bestimmt werden können. Es sind hier u. a. Anwendungen in der Geologie, in der Technik (z. B. bei der Produktions-überwachung), in der Biochemie und Medizin (Ersatz von Radionukliden), in der analytischen Chemie und schließlich ganz allgemein in der Naturwissenschaft zu nennen. Vorteilhaft ist hier die große chemische Beständigkeit der Farbstoffe — sie überstehen z. B. konz. Schwefelsäure bei 100°C oder die Bedingungen der radikalische Polymerisation — und die große Lichtechtheit, die ein Ausbleichen auch in verdünnten Lösungen nicht befürchten lassen. Die gute Wasserlöslichkeit der Farbstoffe erweitert hier die Einsatzmöglichkeiten der Perylenfarbstoffe erheblich.

Verwendung der Farbstoffe in Szintillationszählern zum Nachweis und zur quantitativen Bestimmung energiereicher Strahlung (z. B. radioaktive Strahlung). Hier kommt neben den großen Fluoreszenzquantenausbeuten die große Beständigkeit der Farbstoffe zu Tragen. Die Perylenfarbstoffe haben bei einer energiedispersiven Analyse einen Elektronenstrom von 50 µA bei 25 kV Beschleunigungsspannung auf 10 000 Ų während drei Minuten ohne irgendein Anzeichen von Zersetzung überstanden. Andere organische Materialien, wie z. B. Cellulose, werden unter diesen Bedingungen rasch zerstört. Es ist daher eine besondere Langzeitstabilität solcher Szintillatorsysteme zu erwarten.

— Aufgrund der besonderen Eigenschaften der Farbstoffe lassen sie sich allgemein in Lichtsammelsystemen verwenden. Hier ist zum einen der Fluoreszenz-Solarkollektor zu nennen (siehe z. B. H. Langhals, Nachr. Chem. Techn. Lab. 28, 716 (1980)), zum anderen das fluoreszenzaktivierte Displey (W. Greubel und G. Baur, Elektronik 26, 6 (1977)).

- Verwendung der Farbstoffe in Flüssigkristallen: farbige Flüssigkristallanzeigen.

- Die Farbstoffe lassen sich ebenfalls vorteilhaft in Kaltlichtquellen einsetzen, in denen infrarotfreie